# **PCT**

## 世界知的所有権機関 国際事務局 特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類6 C11B 9/02, 1/10, 9/00, A61K 7/46, A23L 1/221

(11) 国際公開番号 A1 WO99/53002

(43) 国際公開日

1999年10月21日(21.10.99)

(21) 国際出願番号

PCT/JP99/01897

(22) 国際出願日

1999年4月9日(09.04.99)

(30) 優先権データ

特願平10/97821

1998年4月9日(09.04.98) JP

(71) 出願人(米国を除くすべての指定国について) サントリー株式会社(SUNTORY LIMITED)[JP/JP]

〒530-8203 大阪府大阪市北区堂島浜2丁目1番40号 Osaka, (JP)

(72) 発明者;および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ)

幹 渉(MIKI, Wataru)[JP/JP]

〒652-0803 兵庫県神戸市兵庫区大開通5-1-15 Hyogo, (JP)

中原光一(NAKAHARA, Koichi)[JP/JP]

〒560-0861 大阪府豊中市東泉丘3-4-A211 Osaka, (JP)

藤井敬久(FUJII, Takahisa)[JP/JP]

〒617-0836 京都府長岡京市勝竜寺17-2-301 Kyoto, (JP)

永見憲三(NAGAMI, Kenzo)[JP/JP]

〒532-0005 大阪府大阪市淀川区三国本町3-8-12-509 Osaka, (JP)

新井邦夫(ARAI, Kunio)[JP/JP]

〒982-0032 宮城県仙台市太白区富沢3-4-6 Miyagi, (JP)

(74) 代理人

弁理士 社本一夫,外(SHAMOTO, Ichio et al.)〒100-0004 東京都千代田区大手町二丁目2番1号

新大手町ビル206区 ユアサハラ法律特許事務所 Tokyo, (JP)

(81) 指定国 JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)

添付公開書類

国際調査報告審

(54)Title: PROCESS FOR PRODUCING ESSENTIAL OILS VIA TREATMENT WITH SUPERCRITICAL WATER AND ESSENTIAL OILS OBTAINED BY TREATMENT WITH SUPERCRITICAL WATER

(54)発明の名称 超臨界水処理による精油の製造方法および超臨界水処理によって得られる精油

#### (57) Abstract

A novel process for producing essential oils from a plant body. More particularly, a plant body is treated with supercritical water or subcritical water to thereby liberate essential oil components contained in the plant body as ester-free essential oils and then the thus liberated essential oils are isolated and purified to thereby give essential oils within a short period of time by a convenient procedure.

# (57)要約

本発明は、植物体から精油を製造する新規方法を提供することを目的とする。 具体的には、植物体を超臨界水または亜臨界水で処理することにより、植物体に 含まれる精油成分をエステルを含まない精油として遊離させ、この精油を分離精 製することにより、短時間にかつ簡便な操作で精油を製造する。

 AE アラブ首長国連邦
 DM ドミニカ
 KZ カザフスタン
 RU ロシア

 AL アルバニア
 EE エストニア
 LC セントルシア
 SD スーゲン

 AM アルバニア
 ES スペイン
 LK スリ・ラン
 SG スーゲン

 AT オーストリア
 FF I フィンランド
 LK スリ・ランカカ
 SK スロウケード・インカイン

 AU オーストリア
 FR カボニン
 LK スリ・リンカル
 SK スロウケード・インカイン

 AZ アセルバイジャン
 GB 英国
 LT リトアニア
 SK スロウケートオオネ

 BB ババドス
 GD グレナダ
 LU ルクセンブルク
 SK スロウケートオオネ

 BB ババギー
 GE グルウナ
 LU ルクセンブルク
 SK スロウテーレドオオネ

 BE イルギー
 GE グルウナ
 LV ラトヴィア
 SZ スア・ドオオネタン

 BE ブルガリフ
 GM ガンピア
 MC モナコ
 TT タト・・キオスタン

 BB バスラル・
 GM ガンピア
 MC モナコ
 TT タト・・ト・ボゴーフラヴィア

 BR ブラジル
 GW ギニア・ピサオ
 MG マグガスア 旧コーゴスラヴィア
 TT トルリニダイナ

 BR グラルーシ
 GR グラルーシ
 MR マクケエスター
 TT トルリニダイナ

 CF 中央アフリカ
 HU マリアチア
 MR モーリタニア
 UG タングイエスターン

 CG コートジボアール
 IL イスラド
 MR モーリタニア
 UG タングイエネースターン

 CC カナダー
 IL イスラド
 NE ニジェーー・ジー
 NE ニジェーー・ジー

 CR コスター
 ID イイタリア
 NE ニジェーー・ジー
 NE ニー・ジー
 </

#### 明細書

超臨界水処理による精油の製造方法および超臨界水処理によって得られる精油

# 5 発明の属する技術分野

本発明は、植物体からの精油の製造方法に関するものであって、特に、精油の 抽出を超臨界状態又は亜臨界状態の水で行うことにより、短時間になおかつ簡便 な操作でエステルを含まないテルペンを主成分とする精油を抽出する製造方法に 関する。

10 従来の技術

15

精油は、種々の植物の花、つぼみ、葉、枝、幹、根などから得られる特有の芳香を持つ揮発性の油で、成分は通常数種のテルペン類、芳香族化合物で構成されており、アルコール、フェノール、エステル等の発香基をもつ。精油は香料の原料として利用されており、従来は水蒸気蒸留法、抽出法、圧搾法等で採取されている。

水蒸気蒸留法とは、水蒸気と共存させることにより、沸点の高い液体をその沸点よりかなり低い温度で留出させる蒸留法であり、抽出法とは、ある成分を溶媒中に溶出させ分離回収する手法である。圧搾法は水蒸気蒸留法あるいは有機溶媒を用いた抽出法を併用し、圧搾することで留出する方法である。

20 これらの従来の方法により採取した精油中には、エステルを含む成分が存在する。エステルは主として酢酸エステル類であるが、精油の保存中に脱エステル反応によって性状が変化するという問題がある。また脱エステル反応によって生じる酢酸そのものによる精油の酸分解と酸化変性が起こりやすいという欠点が存在する。さらに従来の方法はいずれの方法も、収率が低く、処理に多数の工程を経なければならず、短時間に留出を終了することができないという欠点が存在する。また従来の方法では、いずれの方法を用いた場合にも廃棄物である植物体の搾りカスが出るという環境的な観点からみた欠点も存在する。

ところで、超臨界流体に関しては、抽出、精製、合成、分解と様々な応用研究がなされている。超臨界水については、PCB、ダイオキシンの無害化等の研究(

特開平9-327678号)がなされている一方、バイオマスの分解反応についても研究され、特開平5-31000には、超臨界水を溶媒として用い、天然又は合成高分子化合物を選択的に加水分解または熱分解してポリマー類を構成単位若しくはそれらのオリゴマー程度の結合体まで分解する方法、具体的には紙、木材、わら等のポリマー資源中に大量に含まれているセルロースからのグルコースの生成、あるいはリグニン系試料の低分子化が報告されている。また、特開平9-268166にはタンパク質を超臨界状態の水で加水分解して種々のアミノ酸を製造する方法が記載されている。

しかしながら、これまでは植物体を超臨界状態の水で処理することにより、精 10 油を製造する方法は知られていなかった。

### 発明の概要

本発明は、植物体から、精油を製造する新規方法を提供することを目的とする。 本発明はさらに、植物体から、エステルを含まないテルペン類を主成分とする 精油を製造する方法およびその方法により製造した精油を提供することを目的と する。本発明の方法により、水蒸気蒸留等の従来の方法では得られない組成の精 油を提供することができる。

本発明はさらに、精油を得るために汎用されている水蒸気蒸留法等の従来の方法と比較して、抽出操作が極めて短時間(数分以内)に終了する精油の製造方法を提供することを目的とする。

20 本発明はさらに、水蒸気蒸留法等の従来の方法で搾りカスとして生じていた廃 棄物を排出しない、精油の製造方法を提供することを目的とする。

## 発明の詳細な説明

本発明は、植物体を超臨界水または亜臨界水で処理することにより、植物体に 含まれる精油成分をエステルを含まない精油として遊離させ、この精油を分離精 製することにより、短時間にかつ簡便な操作で精油を製造する方法である。

## 使用する植物材

25

本発明において精油を製造するために使用する植物としては、竹、杉、桧、ミズナラ、桜、トチ、松、ヒバ、栗、笹、樫、桐、梅、桃、楓、欅、藤、樅、楡、銀杏、椿、柳、桑、木蓮、柿、杏、花梨、ハマナス、バラ、枇杷、ボケ、キンモ

クセイ、楠、イチイ、アカシア、ウコギ、アミリス、ボアドローズ、ルー等が挙 げられるが、これらに限定されるものではない。選択した植物によって、種々の 香気を有する精油が得られる。上記植物を2種以上混合して用いてもよい。

これらの植物は、幹、樹皮、茎、枝、根、葉、花、芽、種子等のいずれの部分 も使用することができるが、典型的には木質部または花部を用いる。たとえば、 醸造品、飲食品等の製造および/または保存に使用した木製容器を植物体として 用いれば、廃材の有効利用にもつながるので好ましい。

これらの植物体は、いずれの大きさで超臨界水処理を行ってもよく、好ましく は前処理として1cm角程度の大きさに細断してからまたは花部であれば細切して から超臨界水処理を行い、さらに好ましくは植物体を粉末化してから超臨界水処 理を行う。

# 超臨界水処理の条件

20

本発明の方法は、植物体を超臨界水で処理することを特徴とする。

物質には固体、液体、気体の3つの状態があることはよく知られている。気体 15 と液体とが混じり合っている状態から、徐々に温度と圧力を上げていき、ある特 定の圧力と温度(臨界点)を越えると、気体と液体の境界面が消失して両者が渾 然一体となった流体の状態を維持する範囲が存在する。こうした流体を超臨界流 体といい、気体と液体の中間の性質を持つ高密度の流体となる。すなわち液体の ように種々の物質を溶解すると同時に気体のように高い流動性を持つ。

水の場合の臨界点は、温度374℃および圧力221気圧であり、超臨界水とは、こ の臨界点を超えた特定の範囲の温度および圧力状態の水を意味する。超臨界水は 、温度、圧力に依存して密度、粘度、誘電率、イオン積、および拡散係数等の値 が連続的に変化する。反応溶媒として重要な指標である溶解度は密度の増大とと もに大きくなることが知られている。溶解性に関わるもう一つの重要な要素は誘 25 電率であるが、誘電率は密度の増大とともに大きくなり、温度の上昇につれて減 少する。温度が充分に高ければ誘電率は非常に小さくなり、水はイオン間の静電 気力を遮断することがほとんどできなくなる。この条件下では、溶解しているイ オン種の多くはイオン対として存在することになり、したがって超臨界水は、極 性物質というよりも非極性物質として振る舞うのである。ちなみに超臨界状態に

おける水のpHは4であり、したがって水素イオン濃度は1/10000となるが、一方水酸イオン濃度も1/10000であり、液体での水とは全く異なった性状であることが理解できる。

本発明は、上記超臨界水の特徴を利用して精油を製造するものであり、水蒸気蒸留法などの従来の技術と比較して、精油が容易かつ短時間で製造できることを特徴とするものである。このような本発明の特徴に鑑み、超臨界水に準じる亜臨界水により植物体を処理しても同様に精油を得ることができることは容易に予測される。したがって、以下における超臨界水についての言及には、文脈から明らかな場合は亜臨界水も含まれる。

超臨界水処理に際して植物体と水とは、たとえば、植物体1に対して水約1から 10 1,000の割合、好ましくは水約5から200の割合で混合する。反応容器は超臨界水 処理を行うために適する任意のものでよく、製造規模に応じて適宜選択してよい が、たとえば容量が1m1から101、好ましくは10m1から11の密閉容器(好ましくは SUS合金等の金属製)を使用する。この容器中におよそ30から40%(V/V)、好まし くは32から35%(V/V)の水を充塡し、これに上記の割合で植物体を添加する。精 15 油の製造のためには、処理を嫌気状態で行うことが好ましく、容器内を脱気する か、窒素あるいはアルゴン等の不活性ガスで充分に容器内部および水を置換して 密閉するとよい。処理は温度約374℃(このときの圧力は約221気圧以上とする) ~約500℃の温度(約300気圧以上)下において、水がいわゆる超臨界状態である 条件下で、あるいは温度約300℃(圧力約150~200気圧)を超えるいわゆる亜臨 20 界状態である条件下で行う。処理時間は約30分間以内、好ましくは約2分間以内 である。

# 精油の分離精製

超臨界状態の水で処理した植物体は、反応容器ごと氷水等を用いて急冷するなどの手段で冷却し、充分に温度が下がったのを確認して開封する。通常、水溶性物質は水溶液として回収され、脂溶性物質は壁面にタール状に付着する。そこでまず壁面を水洗し、その後に壁面に無水硫酸ナトリウム、塩化カルシウム等の吸水性塩類を降りかけて脱水した後、ヘキサン・ジエチルエーテル混液(混合比は1:1を基本とするが、植物体によって適宜選択する)を溶媒として使用して精油

を回収する。使用できる溶媒の別の例は石油エーテルージエチルエーテル混液、石油ベンジンージエチルエーテル混液等である。回収した精油は、適宜、活性炭、吸着担体等を用いて精製して目的に応じて使用する。精製法としては、各種クロマトグラフィーの実施、各種分離膜の使用、各種樹脂の使用等によるが、これらの手法に限定されるものではない。

このようにして得られた精油は、そのままで香料として、または、食品あるいは化粧品素材として使用することができる。また、医薬品への応用も期待できる。 精油を抽出した後のタール状物質は、さらに別の有用成分を含んでいる可能性がある。たとえば、アルコール、アセトン、アセトニトリル等の有機溶媒でさらに抽出して、フェニルプロパノイド類、ピロガロール誘導体、ピロカテコール誘導体等を含む芳香族化合物を回収することが可能である。

また、反応容器から回収された水溶液は、たとえばグルコースやリグニン等の 低分子化合物を含んでいる可能性があり、必要に応じてそれらを別途単離しても よい。

15 以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明する。ただし、本発明は実施 例に限定されるものではない。

## 実施例1

モクレン材を鋸を用いて細切、粉末化した。SUS合金製の反応容器(内容量10m 1)に蒸留水3.25mlを入れ、これにモクレン材粉末500mgを添加後、充分に窒素を 20 用いて容器内を置換し、速やかに密閉した。別途準備した380℃に保温中の樹脂製バス(マントルヒーターに充塡)に反応容器を入れ、221気圧以上で45秒間反応後、氷水に容器ごと浸けて冷却した。内容物の温度が40℃になった時点で容器を開封し、まず水溶液を除去した後、壁に無水硫酸ナトリウムを3g振りかけ、5 分間放置した。その後、直ちにヘキサン・ジエチルエーテル(1:1)混合液約10 mlで精油成分を抽出した。精油成分は終濃度2,000ppmの活性炭で処理し、その成分組成を高速液体クロマトグラフィー(担体;ナカライテスク製シリカゲル順相、移動相;ヘキサンからジエチルエーテルまで50分間グラディエント溶出、流速1m1/分、検出波長280nm)およびガスクロマトグラフィー(担体;Cellite:Carbowax 1500=10:2、温度;170℃、キャリアーガス;窒素ガス、流速0.6kg/cm²

# )を適宜用いて確認した。

その結果を表 1 に示す。結果が示すとおり、水蒸気蒸留法では主成分として得られるエステル化合物、酢酸ボルネルは検出されず、代わってボルネオールが主成分として得られた。また、モクレン材そのものに対する収油率は、水蒸気蒸留 法と比較して約5倍であった。(水蒸気蒸留法;0.6%、本法;3.1%)

表1. モクレンの精油成分 (対照として水蒸気蒸留法での結果を合わせて記す)

				(%)
10		本方法	水蒸気蒸留法	
	ピネン類	1. 4	1. 2	
	カンフェン	2. 0	2.0	
	ミルセン	0.8	0. 7	
	リモネン	0. 6	0. 5	
15	pーサイメン	1. 2	1. 2	
٠	ボルネオール	9. 0	3. 5	
	ショウノウ	1. 1	1. 1	
	酢酸ボルニル	_	5. 0	
	メチルケトン類	15. 5	15. 2	
20	カジノール類	3. 0	3. 2	
	その他	65. 4	66. 4	

# <u>実施例2</u>

桧材を鋸を用いて細切、粉末化した。SUS合金製の反応容器(内容量10ml)に 素留水3.25mlを入れ、これに桧材粉末500mgを添加後、十分に窒素を用いて容器 内を置換し、速やかに密閉した。別途準備した380℃に保温中の樹脂製バス(マ ントルヒーターに充塡)に反応容器を入れ、221気圧以上で45秒間反応後、氷 水に容器ごと漬けて冷却した。40℃になった時点で容器を開封し、まず水溶液を 除去した後、壁に無水硫酸ナトリウムを3g振りかけ、5分間放置した。その後、

直ちにヘキサンージエチルエーテル(1:1)混合液で精油成分を抽出し、終濃度2,000ppmの活性炭で処理後、エバポレーターを用いて溶媒を留去して精油を得た。 得られた精油は特有の香りを有していた。

# 実施例3

5 バラの花弁をはさみを用いて2~3 mmに細切した。SUS合金製の反応容器(内容量10ml)に蒸留水3.25mlを入れ、これに花弁細切物500mgを添加後、充分に窒素を用いて容器内を置換し、速やかに密閉した。別途準備した380℃に保温中の樹脂製バス(マントルヒーターに充塡)に反応容器を入れ、221気圧以上で45秒間反応後、氷水に容器ごと漬けて冷却した。40℃になった時点で容器を開封し、まず水溶液を除去した後、壁に無水硫酸ナトリウムを3g振りかけ、5分間放置した。その後、直ちにヘキサンージエチルエーテル(1:1)混合液で精油成分を抽出し、終濃度2,000ppmの活性炭で処理後、エバポレーターを用いて溶媒を留去して精油を得た。得られた精油は特有の香りを有していた。

15

20

25

## 発明の効果

本発明の方法により、水蒸気蒸留法と比較して、極めて容易に短時間で効率的に精油を得ることができる。

さらに、本発明の方法により、エステル結合が切れることにより、エステルを含まないテルペン類を主成分とする精油を抽出することが可能である。エステルは主として酢酸エステル類であるが、本発明の方法で抽出された精油はその保存中に生じる脱エステル反応によって生じる酢酸そのものによる酸分解と酸化変性が起こりにくいという特徴を有する。植物体には酢酸エステルが相当量存在するが、超臨界状態の水による処理によって酢酸は水溶性となり、例えば酢酸ボルニルは不ケン化物ボルネオールとして精油中に回収される。このような特徴を有する本発明の方法により製造された精油は、エステルを含まないため、酸化に強く、また保存中の脱酢酸による酸変性も抑えられるところから、従来法で得られる精油と比較して保存性に富む。さらに、エステル香がないところから全体としての香りも水蒸気蒸留法から得られるものと比べて異なった特徴を有する。また、極性が安定していて取り扱い易さに優れており、化粧品原料、食品原料として使

用する場合に適している。

さらに本発明の方法により精油を製造する場合、従来の方法で排出されていた 搾りカスとしての廃棄物が排出されず、環境に優しい技術が提供される。

## 請求の範囲

- 1. 植物体を超臨界水または亜臨界水で処理することによる、精油の製造方法。
- 2. 精油がエステルを含まないテルペンを主成分とするものである、請求項1の精油の製造方法。
- 3. 植物体を水とともに加圧容器内で、150~300気圧の圧力下、300~500℃の温度で加熱した後、該容器内をほぼ100℃以下に冷却して、生じたタール状物質を、ヘキサンージエチルエーテル混液、石油エーテルージエチルエーテル混液、石油ベンジンージエチルエーテル混液等からなる群から選択される有機溶媒を用いて抽出し、該抽出液から精油を分離することからなる、植物由来の精油の製造
   方法。
  - 4. 150~300気圧の圧力下、300~500℃の温度での加熱が、減圧下および不活性ガス中から選択される嫌気状態で、30分間以下、好ましくは2分間以下の時間行われる、請求項3の方法。
- 5. 植物体が、細断・細切ないし粉末化された木質部または花部である請求項 15 4の方法。
  - 6. 植物体 1 容量部を、水 1 ~ 1, 0 0 0、好ましくは 2 ~ 2 0 0 容量部とともに加圧容器内で加熱する、請求項 5 の方法。
  - 7. 請求項1ないし6のいずれか1項の製造方法によって製造される、エステルを含まないテルペンを主成分とする精油。
- 20 8. 請求項7記載の精油を含む香料。
  - 9. 請求項7記載の精油を含む化粧品。
  - 10. 請求項7記載の精油を含む食品。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP99/01897

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>6</sup> C11B9/02, C11B1/10, C11B9/00, A61K7/46, A23L1/221							
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC							
B. FIELDS SEARCHED							
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>6</sup> C11B9/02, C11B1/10, C11B9/00, A61K7/46, A23L1/221							
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched							
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CA (STN), JOIS							
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT						
Category*	Citation of document, with indication, where app		Relevant to claim No.				
X Y	Nobuo Kobayashi, "Ima naze cho Engineering Materials, 1996, p.102-104 (particularly Table column, lines 2 to 7)	1, 2, 7-10					
X Y	Tatsurou Oohira, "Chou rinkai r mokuzai kougyou heno ouyou", Vol. 52, No. 9, p.428-432	1, 2, 7-10 3-6					
A	JP, 6-184182, A (Research De Japan), 5 July, 1994 (05. 07. 94), (particularly page 3, left colu column, lines 8 to 12) (Fami	3-6					
У	Osamu Okuda, "Kouryou Kagaku edition, Tokyo: Hirokawa Shot (15. 02. 72) p.392-472, p.533	7-10					
Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.					
"A" docum consid "E" earlier "L" docum cited t specia "O" docum means "P" docum the pri	nent published prior to the international filing date but later than iority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family					
Date of the	actual completion of the international search June, 1999 (17. 06. 99)	Date of mailing of the international se 29 June, 1999 (29	earch report  . 06. 99)				
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer					
Provincia Na		Telephone No.					

	国際調査報告	国際出願番号 PCT/JP99	/01891			
A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))						
Int. Cl. 6 C11B9/02, C11B1/10, C11B9/00, A61K7/46, A23L1/221						
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))						
調査を行うた取り収責を行い。 Int. Cl. 6 Cl1B9/02, Cl1B1/10, Cl1B9/00, A61K7/46, A23L1/221						
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの						
国際調査で使用	]した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)				
CA (STN), JOIS						
の関連する	らと認められる文献					
<ul><li>C. 関連する</li><li>引用文献の</li><li>カテゴリー*</li></ul>	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	きは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号			
X Y	小林宣男. 'いま,なぜ超臨界流体z 第44巻,第9号,p.102-104(特に	1, 2, 7-10 3-6,				
X Y	大平辰朗. '超臨界流体の利用とその 木材工業, 1997,第52巻,第	1, 2, 7-10 3-6				
A	JP,6-184182,A(新技術事業団)5.7 (特にp.3 の左欄30-31行,右欄8-12	3-6				
Y	奥田治. [香料化学総覧(II)]第 2 版,東京:株式会社廣川書店, 15. 2月. 1972(15. 02. 72) p. 392-472, p. 533-648					
□ C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	川紙を参照。 			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献				
国際調査を完了した日 17.06.99		国際調査報告の発送日 29.06.99				
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP)		特許庁審査官(権限のある職員)。 岩瀬 真紀子	和 4V 2115			
郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		電話番号 03-3581-1101				